

Brennstoffzellen-Elektrode

Publication number: DE19908591

Publication date: 2000-08-31

Inventor: KULIKOVSKY ANDREI (DE); DIVISEK JIRI (DE);
KORNYSHEV ALEXI (DE); OETJEN HANS-FRIEDRICH
(DE)

Applicant: KERNFORSCHUNGSANLAGE JUELICH (DE)

Classification:

- International: *H01M4/86; H01M8/10; H01M4/86; H01M8/10*; (IPC1-7):
H01M4/86; H01M4/88

- European: H01M4/86; H01M8/10B2

Application number: DE19991008591 19990227

Priority number(s): DE19991008591 19990227

Also published as:



WO0052775 (A1)

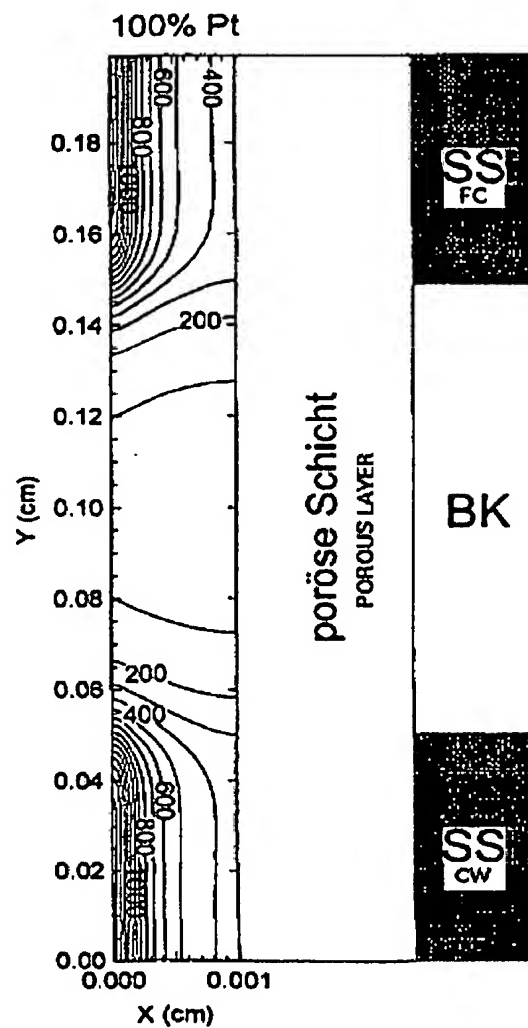
EP1157435 (A1)

EP1157435 (A0)

Report a data error here

Abstract of DE19908591

The invention relates to a new method for reducing the costs for electrodes of polymer electrolyte fuel cells, also for direct methanol fuel cells. Said method is characterized in that the catalyst for the electrochemical reaction is either partially or completely removed from the catalytically active layer, namely from the areas underneath the fuel channels if fuel or oxidation agent transport across the diffusion layer is good, or from the areas underneath the conductive webs if fuel or oxidation agent transport across the diffusion layer is bad.



Data supplied from the *esp@cenet* database - Worldwide

POWERED BY **Dialog**

Fuel cell electrode, for a polymer electrolyte fuel cell e.g. a direct methanol fuel cell, has a catalyst quantity varied in dependence on the position of fuel channels and current connectors

Patent Assignee: FORSCHUNGSZENTRUM JUELICH GMBH

Inventors: DIVISEK J; KORNYSHEV A; KULIKOVSKY A; OETJEN H

Patent Family (4 patents, 22 countries)

Patent Number	Kind	Date	Application Number	Kind	Date	Update	Type
DE 19908591	A1	20000831	DE 19908591	A	19990227	200055	B
WO 2000052775	A1	20000908	WO 2000DE577	A	20000225	200055	E
EP 1157435	A1	20011128	EP 2000914047	A	20000225	200201	E
			WO 2000DE577	A	20000225		
DE 19908591	B4	20040916	DE 19908591	A	19990227	200460	E

Priority Application Number (Number Kind Date): DE 19908591 A 19990227

Patent Details

Patent Number	Kind	Language	Pages	Drawings	Filing Notes
DE 19908591	A1	DE	10	4	
WO 2000052775	A1	DE			
National Designated States, Original	CA JP US				
Regional Designated States, Original	AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE IT LU MC NL PT SE				
EP 1157435	A1	DE			PCT Application WO 2000DE577
					Based on OPI patent WO 2000052775

Regional	AT BE CH CY DE DK ES FI FR GB GR IE
Designated	IT LI LU MC NL PT SE
States,Original	

Alerting Abstract: DE A1

NOVELTY – A fuel cell electrode has a catalyst quantity varied in dependence on the position of functional medium channels and current conducting connectors.

DESCRIPTION – An **INDEPENDENT CLAIM** is also included for production of the above fuel cell electrode. Preferred Features: The catalyst concentration or quantity variation is ≥ 20 wt.%.

USE – As an electrode for a polymer electrolyte fuel cell, e.g. a direct methanol fuel cell (DMFC).

ADVANTAGE – The design allows the catalyst quantity to be reduced by providing catalyst only at regions where increased electrochemical conversion is required, thus providing reduced costs with insignificant reduction ($> 5\%$) in conversion.

International Classification (Main): H01M-004/86 (**Additional/Secondary):** H01M-004/88, H01M-008/10

Derwent World Patents Index Latest

© 2007 Derwent Information Ltd. All rights reserved.

Dialog® File Number 352 Accession Number 10267461



①9 BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑫ **Offenlegungsschrift**
⑩ **DE 199 08 591 A 1**

⑤ Int. Cl.7:
H 01 M 4/86
H 01 M 4/88

②1 Aktenzeichen: 199 08 591.9
②2 Anmeldetag: 27. 2. 1999
④3 Offenlegungstag: 31. 8. 2000

DE 199 08 591 A 1

⑦1 Anmelder:
Forschungszentrum Jülich GmbH, 52428 Jülich, DE

⑦2 Erfinder:
Kulikovskiy, Andrei, 52428 Jülich, DE; Divisek, Jiri,
Dr., 52428 Jülich, DE; Kornyshev, Alexi, Prof., 52428
Jülich, DE; Oetjen, Hans-Friedrich, 52441 Linnich,
DE

⑤6 Entgegenhaltungen:
DE 195 19 847 C1
US 45 67 117 A

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Brennstoffzellen-Elektrode

⑤7 Die Erfindung betrifft eine neue Methode der Kostenre-
duktion für die Elektroden der Polymerelektrolyt-Brenn-
stoffzellen, auch der Direkt-Methanol-Brennstoffzelle, die
darauf basiert, daß der Katalysator für die elektrochemi-
sche Reaktion entweder teilweise oder vollständig aus
der katalytisch aktiven Schicht entfernt wird

- aus den unter den Betriebsstoffkanälen liegenden Be-
reichen im Falle des guten Brennstoff- bzw. Oxidations-
mittel-Transports durch die Diffusionsschicht,
- aus den unter den Stromleitungsstegen liegenden Be-
reichen im Falle des schlechten Brennstoff- bzw. Oxidati-
onsmittel-Transports durch die Diffusionsschicht.

DE 199 08 591 A 1

Die Erfindung betrifft eine Brennstoffzellen-Elektrode mit Betriebsstoffkanälen und Stromleitungsstege oder mit einem Verbindungselement, welches Betriebsstoffkanäle und Stromleitungsstege aufweist, sowie mit einer porösen Schicht und Katalysator. Ferner betrifft die Erfindung ein Verfahren zur Herstellung einer anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode sowie die Verwendung der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode bei der Energieerzeugung durch elektrochemische Umsetzung eines Brennstoffs in einer Brennstoffzelle.

Eine Brennstoffzelle weist eine Anode, einen Elektrolyten und eine Kathode auf. Der Kathode wird ein Oxidationsmittel, z. B. Luft und der Anode wird ein Brennstoff, z. B. Wasserstoff oder Methanol zugeführt. Kathode und Anode einer Brennstoffzelle weisen in der Regel eine durchgehende Porosität auf, damit die beiden Betriebsstoffe, das Oxidationsmittel und der Brennstoff, den aktiven Bereichen der Elektroden zugeführt werden können. Als Anodenmaterial wird bevorzugt Platin oder eine Platin/Ruthenium-Legierung verwendet. Als Kathode dient als bevorzugtes Material Platin. Das Anoden- und Kathodenmaterial kann nach einem Verfahren, wie es in DE PS 42 41 150 beschrieben wird, in die Membran-Elektroden-Anordnung (MEA) integriert werden.

Eine Katalysatorbelegung mit Edelmetallen, die einen vollständigen Brennstoffverbrauch bewirkt, ist nachteilig sehr teuer. Andererseits kommt es bei einer geringen Katalysatorbelegung nur zu unvollständigem Brennstoffumsatz. Dies führt, wie z. B. bei der Methanol-Brennstoffzelle, nachteilig zur Diffusion des nicht umgesetzten Brennstoffs zur Kathode, wo es zur Hemmung der Kathodenreaktion kommt.

In der deutschen Patentanmeldung mit dem amtlichen Aktenzeichen 198 12 498.8-45 wird ein Verfahren zur materialsparenden Herstellung von Elektroden für eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle beschrieben. Hierbei wird eine das Katalysatormaterial aufweisende Mischung auf einen Träger aufgebracht. Der Träger wird während des Aufbringens von einer Strahlung durchdrungen. Die sich während des Auftragens ändernde Absorption der Strahlung wird registriert und steuert die weitere Auftragung der Mischung.

In dem amerikanischen Patent US 52 11 984 wird ein Verfahren zur materialsparenden Herstellung von Elektroden für eine Niedertemperatur-Brennstoffzelle beschrieben. Hierbei wird eine Membran durch Tonenaustausch in kationische Form überführt, eine Pt enthaltene Suspension in dünner Schicht direkt auf die Membran aufgetragen, und nach einer Temperaturbehandlung zurück in die protonische Form konvertiert. Ausgehend von dieser Schicht wird in dem nachfolgenden amerikanischen Patent US PS 52 34 777 die Herstellung einer leistungsfähigen Membran-Elektroden-Einheit mit minimaler Katalysatorbelegung von weniger als 0,35 mg Pt/cm² beschrieben, wobei die durch den Ionenaustausch erfolgte erhöhte Thermoplastizität benutzt wird.

Aufgabe der Erfindung ist es, eine weitere preiswerte Brennstoffzellen-Elektrode zu schaffen, die eine sehr gute Aktivität für den Brennstoffzellenumsatz aufweist, sowie ein Verfahren bereitzustellen, um eine solche anspruchsgemäße Brennstoffzellen-Elektrode herzustellen.

Die Aufgabe wird gelöst durch eine Vorrichtung nach Anspruch 1 sowie ein Verfahren gemäß Nebenanspruch. Vorteilhafte Ausführungen ergeben sich aus den rückbezogenen Ansprüchen.

Die anspruchsgemäße Brennstoffzellen-Elektrode weist ein Verbindungselement auf, z. B. eine geeignet strukturierte bipolare Platte, in der Betriebsstoffkanäle und Stromleitungsstege vorhanden sind. Die Betriebsstoffkanäle verteilen den Betriebsstoff, z. B. Methanol oder Wasserstoff, während über die Stromleitungsstege der Strom der Elektrode zu- bzw. von ihr fortgeleitet wird. Die anspruchsgemäße Brennstoffzellen-Elektrode weist ferner eine poröse Schicht, die an das Verbindungselement angrenzt, und Katalysator auf. In der porösen Schicht wird ein Betriebsmittel, ein Brennstoff oder ein Oxidationsmittel, wie z. B. Sauerstoff oder Luft, den jeweils aktiven Bereichen zugeführt, so daß eine elektrochemische Umsetzung stattfinden kann.

Die Betriebsstoffkanäle können aber beispielsweise auch in der porösen Schicht der Elektrode integriert sein, wobei die Zwischenräume zwischen den Betriebsstoffkanälen die Funktion der Stromleitungsstege übernehmen. Der Katalysator befindet sich in oder auf der porösen Schicht gegenüber dem Verbindungselement. Im Fall der in der porösen Schicht integrierten Brennstoffkanäle befindet er sich in oder auf einer Seite der porösen Schicht. Als geeignete Katalysatoren werden beispielsweise Platin, Palladium oder Platin-Ruthenium-Legierungen eingesetzt. Die Konzentration des Katalysators bzw. die Menge in bzw. auf der porösen Schicht ist nicht konstant, sondern variiert in Abhängigkeit von der Position der Betriebsstoffkanäle und/oder der Stromleitungsstege. Vorteilhaft sind genau die Bereiche der porösen Schicht, die den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegen, mit einer anderen Konzentration bzw. Menge an Katalysator belegt, als die Bereiche, die den Stromleitungsstege gegenüberliegen.

Es sollen gerade diejenigen Bereiche der Elektrode mit einer nur geringen Menge an Katalysator oder gar nicht belegt werden, die nur eine geringe elektrochemische Umsatzrate ausweisen. Durch wenige Versuche kann die geeignete Variation gemäß Anspruch 1 ermittelt werden.

Diese unterschiedliche Belegung mit Katalysator führt während des Brennstoffzellenbetriebs dazu, daß die Elektroden in Abhängigkeit von der eingesetzten Katalysatormenge trotz reduzierten Materialeinsatzes eine gute Aktivität zeigen. Der Katalysator wird nur dort eingesetzt, wo er zur Erhöhung der elektrochemischen Umsetzung wesentlich beiträgt.

Der optimierte Einsatz des Katalysators ergibt eine nur unwesentlich verringerte Umsatzleistung (max. 5%) der gesamten Brennstoffzelle bei deutlicher Einsparung der einzusetzenden Katalysatormenge.

Anspruch 2

In einer vorteilhaften Ausgestaltung der Brennstoffzellen-Elektrode variiert die Konzentration oder die Menge an Katalysator um wenigstens 20 Gew.-%, insbesondere um 30 Gew.-%. Durch eine solche Variation ist eine verbesserte Ausnutzung des Katalysators sichergestellt, da die Bereiche nur entsprechend ihrer Umsatzraten mit Katalysator belegt werden.

Anspruch 3

Vorteilhaft ist auch eine Ausführung der Brennstoffzellen-Elektrode, bei der die Konzentration oder die Menge des Katalysators entlang der Ebene Brennstoffkanal/Leistungsstege fluktuierend variiert, und zwar insbesondere periodisch entsprechend der Position der Brennstoffkanäle bzw. der Stromleitungsstege. Periodisch bedeutet dabei, die Kon-

zentration bzw. die Menge des Katalysators nimmt für entsprechend wiederkehrende Bereiche, z. B. für Bereiche, die den Brennstoffkanälen gegenüberliegen, jeweils gleiche Werte an. Eine solche periodische Belegung ist z. B. eine definierte Konzentration bzw. Menge an Katalysator (K1) in den Bereichen, die jeweils gegenüber den Brennstoffkanälen liegen, und eine andere, z. B. geringere Konzentration bzw. Menge an Katalysator (K2) in den Bereichen, die jeweils gegenüber den Stromleitungsstegen liegen. Diese Fluktuation in der Belegung des Katalysators führt zu einer einheitlichen Belegung mit Katalysator in den Bereichen, die einerseits den Brennstoffkanälen und andererseits den Stromleitungsstegen gegenüberliegen. Dadurch werden gleiche Umsetzungsraten in den jeweils gleichen Bereichen erreicht.

Anspruch 4

In einer vorteilhaften Ausführung der Brennstoffzellen-Elektrode bildet der aufgebrachte Katalysator allein, oder eine Mischung, die den Katalysator enthält, eine Schicht (Katalysatorschicht) auf der porösen Schicht der Elektrode. Diese Form der Katalysatorbelegung ermöglicht es, besonders einfach die anspruchsgemäßen Konzentrations- bzw. Mengenunterschiede an Katalysator durch verschiedene Schichtdicken der Katalysatorschicht zu erzielen. Unterschiedliche Schichtdicken lassen sich z. B. durch Verwendung von Masken bei der Aufbringung des Katalysatormaterials erreichen. Eine weitere Möglichkeit ist es, zunächst eine gleichförmige Katalysatorschicht aufzubringen und anschließend bestimmte Bereiche aus dieser Schicht zu entfernen.

Anspruch 5

Eine vorteilhafte Ausgestaltung der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode weist in den Bereichen der porösen Schicht, die den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegen, eine geringere Konzentration an Katalysator auf als in den Bereichen, die den Stromkanälen gegenüberliegen. Diese Ausgestaltung wird in einer Brennstoffzelle vorteilhaft in den Fällen eingesetzt, in denen während des Betriebs die Diffusion des Brenngases hoch ist.

Unter Diffusion des Brenngases ist der Stofftransport des Brenngases aus den Brennstoffkanälen in die poröse Schicht hinein zu verstehen. Eine hohe Diffusion liegt vor, wenn die Verteilung des elektrochemisch aktiven Stoffes innerhalb der porösen Schicht der Elektrode um weniger als 20% zwischen den Bereichen unter den Betriebsstoffkanälen und den Bereichen unter den Leitungsstegen während des Brennstoffzellenbetriebs variiert.

Im Fall eines schichtförmig aufgetragenen Katalysators können beispielsweise jeweils die Bereiche an Katalysatormaterial, die den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegen, abgetragen werden.

Es hat sich gezeigt, daß eine solche Ausgestaltung der Elektrode, bei der wesentliche Teile der Elektrode nicht oder nur gering mit Katalysator belegt sind, nur unwesentlich verringerte Umsatzraten während des Brennstoffzellenbetriebs aufweist. Dieser Effekt tritt sowohl bei hoher als auch bei niedriger Leitfähigkeit der porösen Schicht auf, ist also von dieser unabhängig.

Anspruch 6

Eine weitere vorteilhafte Ausgestaltung der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode weist in den Bereichen der porösen Schicht, die den Betriebsstoffkanälen gegen-

überliegen, eine höhere Konzentration an Katalysator auf als in den Bereichen, die den Stromkanälen gegenüberliegen. Diese Ausgestaltung ist besonders bei niedrigen Diffusionsraten des Brenngases in der porösen Schicht während des Brennstoffzellenbetriebs vorteilhaft. Eine niedrige Diffusion liegt vor, wenn die Verteilung des elektrochemisch aktiven Stoffes innerhalb der porösen Schicht der Elektrode um mehr als 50% zwischen den Bereichen unter den Betriebsstoffkanälen und den Bereichen unter den Leitungsstegen während des Brennstoffzellenbetriebs variiert.

Im Fall eines schichtförmig aufgetragenen Katalysators können beispielsweise jeweils die Bereiche an Katalysatormaterial, die den Stromleitungsstegen gegenüberliegen, abgetragen werden.

Im Fall von niedrigen Diffusionsraten des Brenngases findet die chemische Umsetzung im wesentlichen in den Bereichen statt, die den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegen. Daher kann auf Katalysatormaterial, welches sich gegenüber den Stromleitungsstegen befindet, verzichtet werden, da es nicht zur Erhöhung der Zelleistung beiträgt.

Insgesamt ist es geboten, die geeignete Variation im jeweiligen Einzelfall durch Versuche zu ermitteln, da die Einflüsse der jeweils vorliegenden Randbedingungen sehr vielfältig sein können.

Anspruch 7

Bei weiteren vorteilhaften Verfahren zur Herstellung der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode wird zum einen zunächst Katalysator in einheitlicher Konzentration bzw. Menge aufgebracht und anschließend ganz oder teilweise aus definierten Bereichen wieder entfernt. Durch dieses nachträgliche Entfernen kann gezielt Katalysator in den Bereichen eingespart werden, die eine nur geringe Umsatzrate aufweisen. Der entfernte Katalysator kann weiter verwendet werden. Alternativ wird der Katalysator fluktuierend aufgebracht, z. B. mit Hilfe einer Maske, so daß nur gerade soviel Katalysatormaterial verwendet wird, wie zur Belegung erforderlich ist.

In beiden Fällen wird die Umsatzrate der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode bezogen auf die eingesetzte Katalysatormenge verbessert.

Die Erfindung wird anhand von vier Figuren näher verdeutlicht. Dabei zeigen

Fig. 1 Konturlinien der elektrochemischen Umsatzrate in $[mA/cm^2]$ in der katalytischen Schicht einer Kathode in einer Direkt-Methanol-Brennstoffzelle (DMFC), elektrochemischer Prozeß: $3/2 O_2 + 6e^- + 6H^+ \rightarrow 3H_2O$, niedrige Leitfähigkeit der porösen Schicht = $0,53 \Omega^{-1} cm^{-1}$, mittlere Stromdichte = $0,4 A/cm^2$.

Fig. 2 Konturlinien der elektrochemischen Umsatzrate in $[mA/cm^2]$ in der katalytischen Schicht einer Kathode in einer DMFC bei konstanter Katalysatorkonzentration (100% Pt) und bei Entfernung des Katalysators aus dem Bereich gegenüber des Betriebsstoffkanals ($0,05 < y < 0,15 cm$) (50% Pt), elektrochemischer Prozeß: $3/2 O_2 + 6e^- + 6H^+ \rightarrow 3H_2O$, hohe Leitfähigkeit der porösen Schicht = $40 \Omega^{-1} cm^{-1}$, mittlere Stromdichte = $0,4 A/cm^2$.

Fig. 3 Modelle zur Verringerung der einzusetzenden Katalysatormenge bei anspruchsgemäßen optimierten Brennstoffzellen-Elektroden.

Fig. 4 Vergleich der Abhängigkeiten der kathodischen Überspannung von der Stromdichte einer DMFC-Brennstoffzelle bei der Anwendung der 100%-Katalysatormenge gegenüber 50% der Katalysatormenge auf der kathodischen Seite der Zelle. Katalysator wurde entfernt aus den Bereichen, die gegenüber den Betriebsstoffkanälen liegen.

Es hat sich gezeigt, daß eine Ausgestaltung der Elektrode, bei der wesentliche Teile der Elektrode nicht oder nur gering mit Katalysator belegt sind, nur unwesentlich verringerte Umsatzraten während des Brennstoffzellenbetriebs aufweist.

Im Fall, daß während des Brennstoffzellenbetriebs das Brenngas eine hohe Diffusionsrate in der porösen Schicht aufweist, tritt dieser Effekt sowohl bei hoher als auch bei niedriger Leitfähigkeit der porösen Schicht auf, wie die Fig. 1 und 2 verdeutlichen. Diese Leitfähigkeit ist im üblichen Sinne definiert als die elektrische Leitfähigkeit eines Festkörpers. Eine hohe Leitfähigkeit im Sinne der Erfindung ist bei Werten $> 10 \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ und eine geringe Leitfähigkeit bei Werten $< 1 \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ gegeben.

Zu Fig. 1

Diese Figur stellt schematisch eine Brennstoffzellen-Elektrode dar, bei der die poröse Schicht eine geringe Leitfähigkeit und eine hohe Diffusivität für das Brenngas aufweist, und bei der die Katalysatorkonzentration konstant ist (100% Pt). Rechts ist ein Verbindungselement mit einem Betriebsstoffkanal BK und zwei Stromleitungsstegen SS eingezeichnet. Daran schließt sich links die poröse Schicht mit einer hohen Leitfähigkeit an. Ganz links befindet sich die Katalysatorschicht (100% Pt). In diese Katalysatorschicht ist ein Konturplot eingetragen, bei dem die Achsen die 2-dimensionale Position in der Katalysatorschicht in der Elektrode wiedergeben.

In Abhängigkeit von der 2-dimensionalen Position innerhalb der katalytischen Schicht sind für die Reaktion $3/2 \text{ O}_2 + 6\text{e}^- + 6\text{H}^+ \rightarrow 3\text{H}_2\text{O}$ bei einer mittleren Stromdichte von $0,4 \text{ A/cm}^2$ und einer Leitfähigkeit der porösen Schicht von $0,53 \Omega^{-1} \text{ cm}^{-1}$ elektrochemische Umsatzraten berechnet worden.

Orte mit gleichem chemischen Umsatz werden im Konturplot durch Konturlinien verbunden. Je enger die im Abstand von 100 mA/cm^2 eingetragenen Konturlinien beieinander liegen, desto größer ist die Veränderung in der elektrochemischen Umsatzrate an der jeweiligen Stelle. Die Orte mit hoher elektrochemischer Umsatzrate befinden sich im wesentlichen in den Bereichen, die den Stromleitungsstegen SS gegenüberliegen.

Daraus wird ersichtlich, daß bei einer porösen Schicht, die eine niedrige Leitfähigkeit und eine hohe Diffusion für das Brenngas aufweist, der Katalysator in dem Bereich gegenüber des Betriebsstoffkanals kaum einen Beitrag zur Zelleistung beisteuert. Eine Entfernung des Katalysators aus diesem Bereich führt zu einer großen Einsparung an Katalysatormaterial, bei nur unwesentlich geringerer Zelleistung.

Zu Fig. 2

Analog zu Fig. 1 ist hier ebenfalls eine Brennstoffzellen-Elektrode dargestellt, bei der die poröse Schicht eine hohe Leitfähigkeit und eine hohe Diffusivität für das Brenngas aufweist. Hierbei sind jedoch zwei unterschiedliche Konturplots eingetragen, die die Verhältnisse unter zwei Bedingungen widerspiegeln. Der linke Konturplot entspricht den Verhältnissen bei einer Katalysatorschicht mit konstanter Konzentration (100% Pt). Die Konturlinien verlaufen gleichförmig nahezu parallel zur porösen Schicht und weisen maximale Umsatzraten von 700 mA/cm^2 auf.

Bei dem rechten Konturplot ist der Katalysator im Bereich von $0,05 < y < 0,15 \text{ cm}$ für die Berechnungen entfernt worden (50% Pt). Das führt zu einem ungleichmäßigen Verlauf der Konturlinien. Der Bereich, aus dem der Katalysator (theoretisch) entfernt wurde, weist nur minimale Umsatza-

ten auf, während sich in den Bereichen, die den Stromleitungsstegen gegenüberliegen, deutlich erhöhte Umsatzraten bis zu 1700 mA/cm^2 zeigen. Die Steigerung der Umsatzrate in diesen Bereichen überwiegt die Verringerung des Umsatzes in den von Katalysator befreiten Bereichen deutlich. (siehe auch Fig. 4)

Zu den Fig. 3.1 und 3.2

Die Fig. 3.1 und 3.2 zeigen schematisch zwei vorteilhafte Ausführungsformen der anspruchsgemäßen Brennstoffzellen-Elektrode mit aufgebracht Membranschicht, bei der Katalysatormaterial jeweils aus den Bereichen entfernt wurde, in denen es nur unwesentlich zur Zelleistung beiträgt. Die Membran-Elektroden-Anordnung (MEA) in der Fig. 3.1 ist vorteilhaft für eine Elektrode, die eine poröse Schicht aufweist, durch die das Reaktionsgas gut diffundieren kann. Hier findet die Umsetzung überwiegend in den Bereichen statt, die den Stromleitungsstegen gegenüberliegen, so daß auf Katalysator in dem Bereich, der dem Betriebsstoffkanal gegenüberliegt, verzichtet werden kann.

Die poröse Schicht in der Membran-Elektroden-Anordnung (MEA) in der Fig. 3.2 weist eine geringe Diffusivität für das Reaktionsgas auf. Die Umsetzung findet hier überwiegend in dem Bereich statt, der dem Betriebsstoffkanal gegenüberliegt, so daß in diesem Fall auf Katalysator in den Bereichen, die den Stromleitungsstegen gegenüberliegen, verzichtet werden kann.

Zu Fig. 4

Diese Graphik zeigt die Abhängigkeiten der kathodischen Überspannung von der Stromdichte einer DMFC-Brennstoffzelle bei der Anwendung der 100%-Katalysatormenge gegenüber 50% der Katalysatormenge auf der kathodischen Seite der Zelle. Bei der Belegung mit 50% Katalysatormenge wurde der Katalysator aus den Bereichen entfernt, die gegenüber den Betriebsstoffkanälen liegen. Die Kurven stellen die geringfügige Verringerung der Energieausbeute als Minderung der Zellspannung infolge der Potentialverluste dar. Die Zellverluste (Potentialverluste) liegen bei einer Stromdichte von $0,4 \text{ A/cm}^2$ deutlich unter 5%.

Patentansprüche

1. Brennstoffzellen-Elektrode mit Betriebsstoffkanälen und Stromleitungsstegen oder mit einem Verbindungselement, welches Betriebsstoffkanäle und Stromleitungsstege aufweist, sowie mit einer porösen Schicht und Katalysator, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Konzentration oder die Menge des Katalysators von der Position der Betriebsstoffkanäle und der Stromleitungsstege abhängt und in Abhängigkeit hiervon variiert.
2. Brennstoffzellen-Elektrode nach vorhergehendem Anspruch, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Konzentration oder die Menge des Katalysators um mindestens 20 Gew.-% variiert.
3. Brennstoffzellen-Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß die Konzentration oder die Menge des Katalysators entlang der Ebene Brennstoffkanal/Leitungsstege fluktuierend variiert, insbesondere periodisch entsprechend der Position der Betriebsstoffkanäle und der Stromleitungsstege.
4. Brennstoffzellen-Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, daß der Katalysator eine Schicht bildet, die variierende

Schichtdicken und/oder Unterbrechungen aufweist.

5. Brennstoffzellen-Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die poröse Schicht in dem Bereich, der den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegt, eine geringere Katalysatorkonzentration aufweist als in den Bereichen, die den Stromleitungsstegen gegenüberliegen. 5

6. Brennstoffzellen-Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, daß die poröse Schicht in dem Bereich, der den Stromleitungsstegen gegenüberliegt, eine geringere Katalysatorkonzentration aufweist als in den Bereichen, die den Betriebsstoffkanälen gegenüberliegen. 10

7. Verfahren zur Herstellung von Brennstoffzellen-Elektroden nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Katalysator mindestens teilweise aus Bereichen einer aufgetragenen Katalysatorschicht entfernt wird oder fluktuierend aufgebracht wird. 15

Hierzu 5 Seite(n) Zeichnungen

20

25

30

35

40

45

50

55

60

65

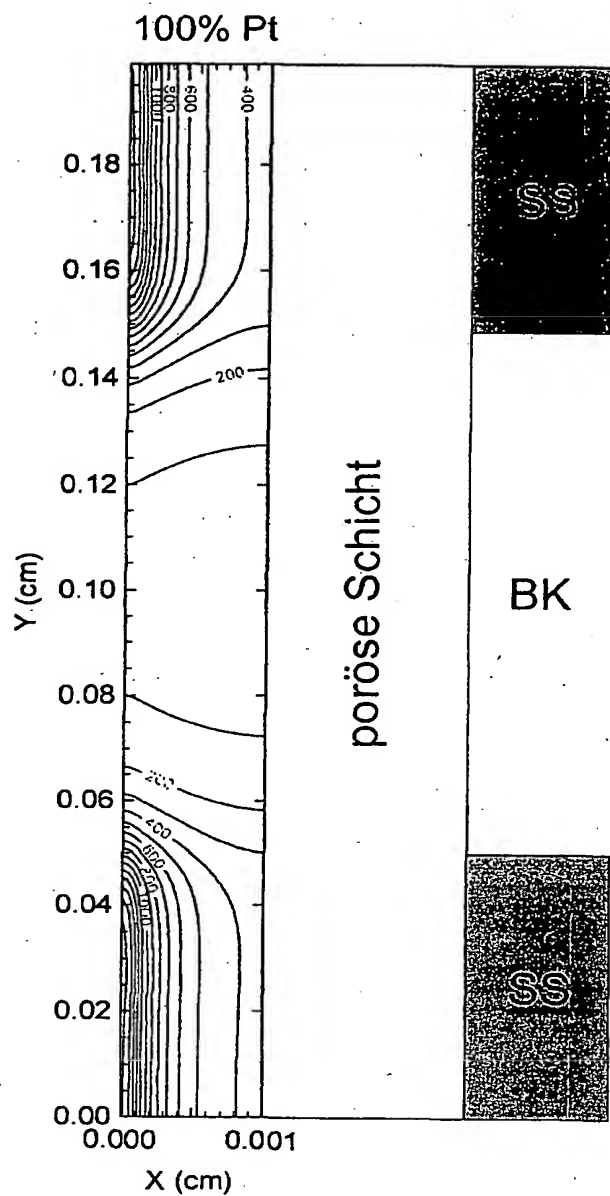


Bild 1

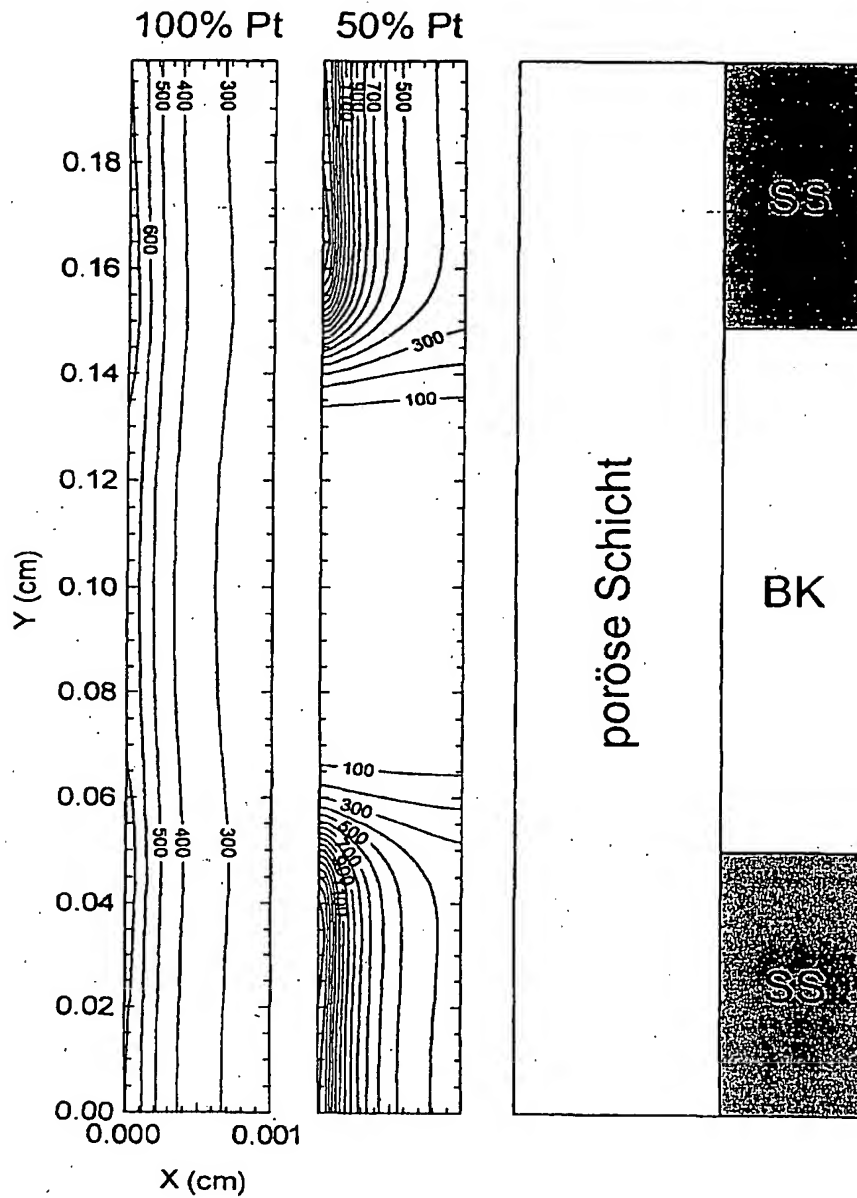


Bild 2

3.1

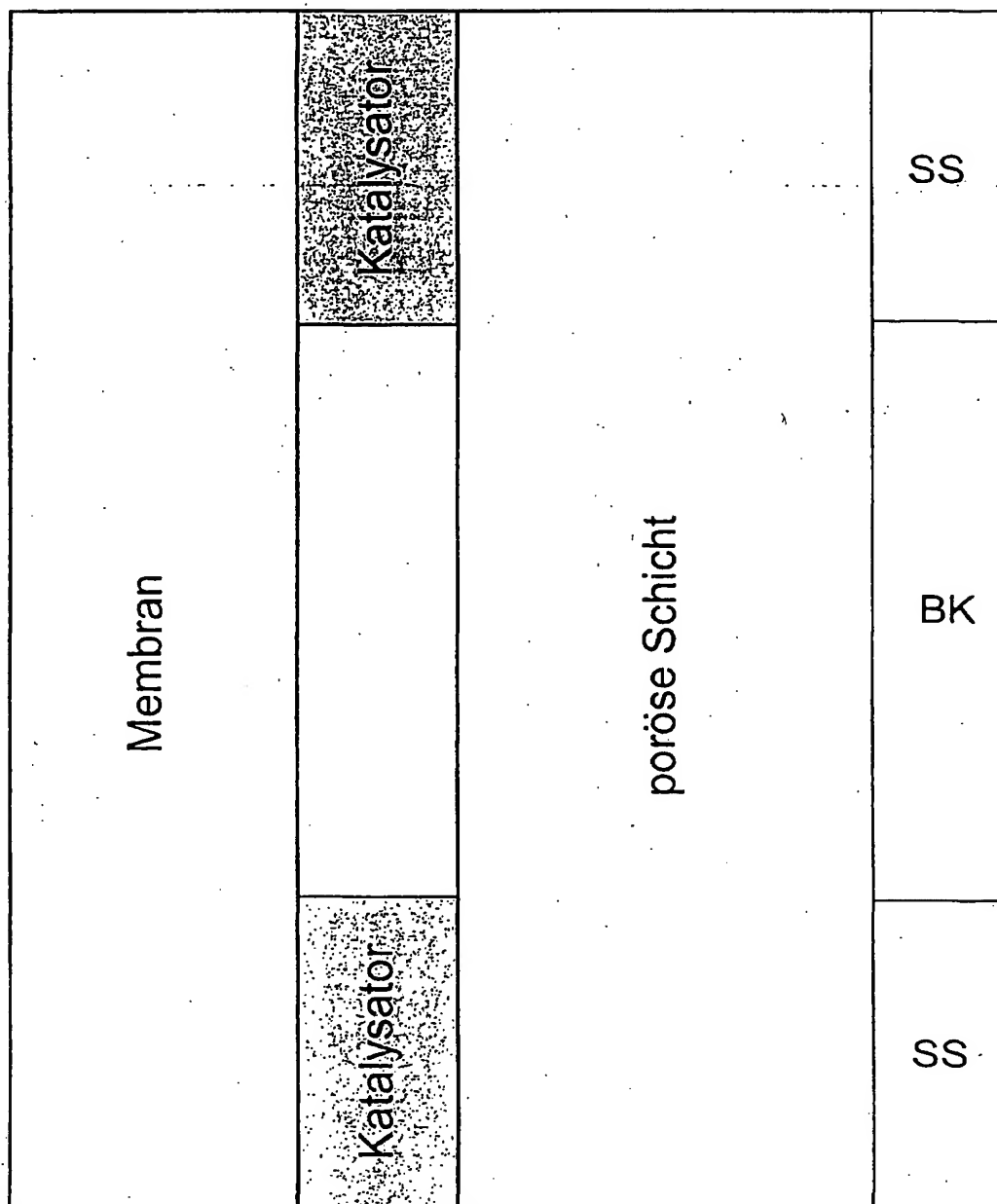


Bild 3.1

3.2

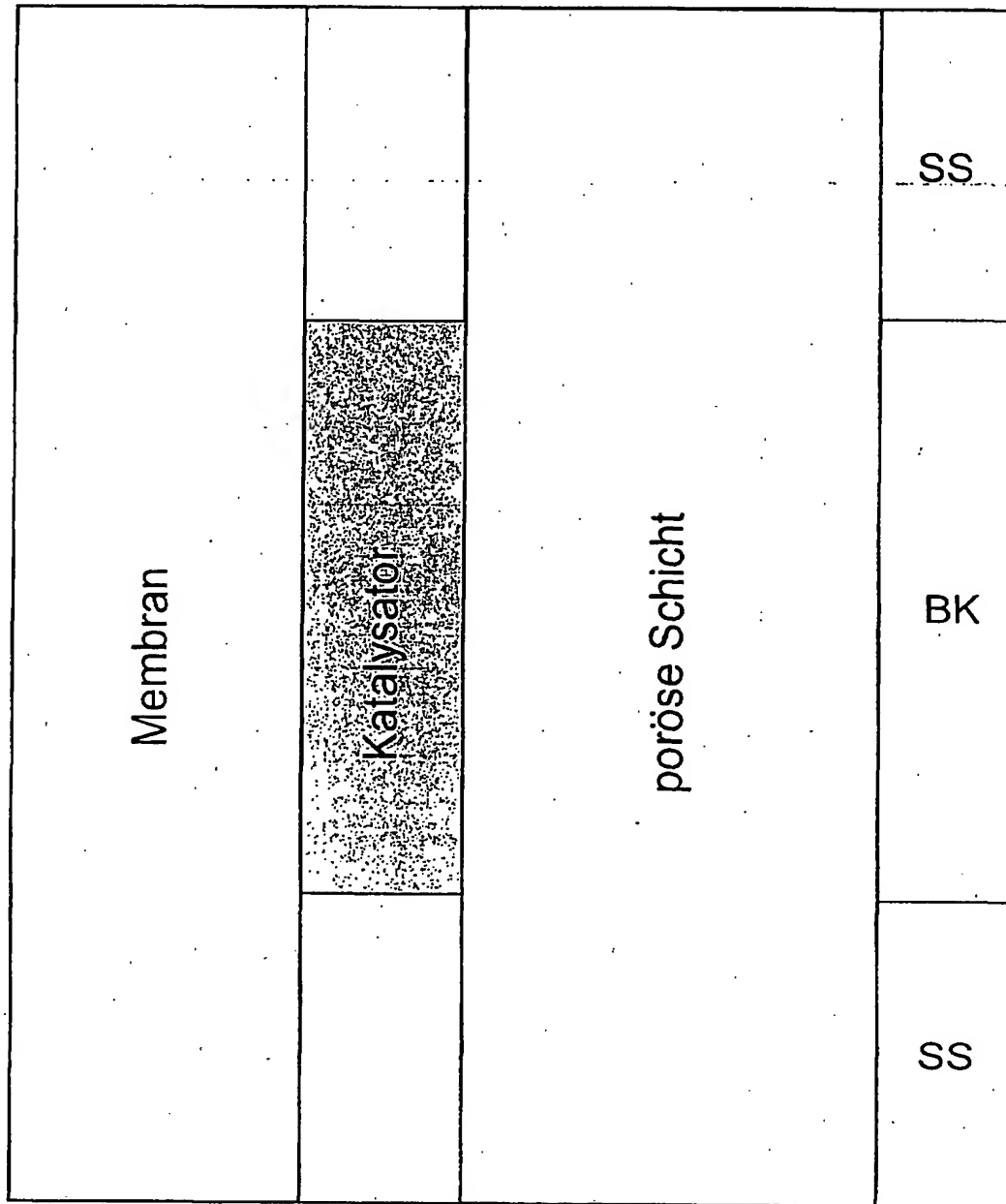


Bild 3.2

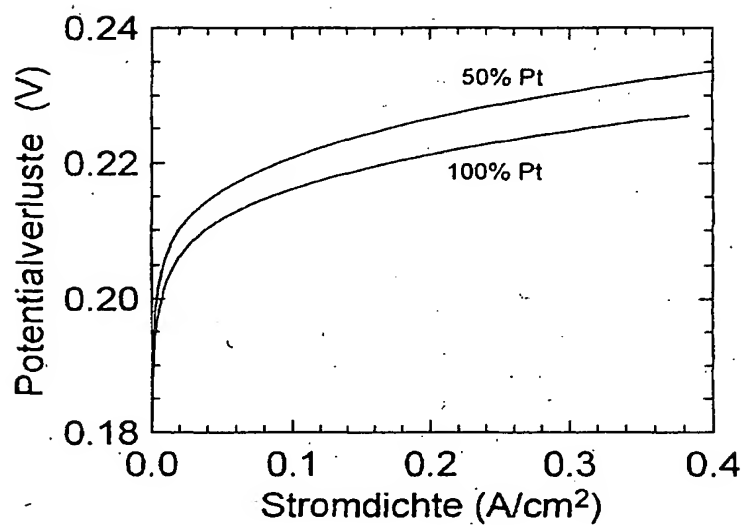


Bild 4